

学位論文要約

水蒸気吸着材ロータによる低露点空気 製造とその運転指針に関する研究

Low Dew Point Air Production by Water Vapor Adsorptive Desiccant Rotor and its
Operating Concept

金沢大学大学院自然科学研究科
システム創成科学専攻
知的システム開発講座

綾目 久雄

Summary

In order to produce low dew point environment required in the industrial fields of lithium-ion rechargeable battery, low dew point air production system using water vapor adsorbent desiccant rotor are used. In this study, an operation improvement method of the system was studied by numerical simulation. First, the angular distributions of air humidity and temperature developed at each outlet of a desiccant rotor were carefully measured and discussed for the help in construction of mathematical model and verification of the simulation results. Next, several simulation models commonly used in desiccant performance simulation has been verified any model most practical. A selected simulation model was developed taking the physical characteristics of the rotor especially at the low humidity region into account. As a result, good agreement between experimental and calculated values was obtained. Then, influences of the principal operating parameters on the process performance were investigated by means of the numerical simulation and the relations between principal operating parameters were summarized in some diagrams. These diagrams can be applied for optimization of the system operation at part load conditions.

1. はじめに

リチウムイオン電池(LIB)が大型蓄電池の分野でさらに普及していくためには、製造コストの削減が喫緊の課題である。また、LIB 製造過程では品質保持のため製造環境の絶対湿度を、通常の居室の $1/100 \sim 1/10000$ というはるかに低いレベルに保つ必要がある。これを低コストで達成する手法として、低露点空気製造用デシカントロータ型除湿機が開発され、その有用性ゆえに当該分野にて広く普及している。

同除湿方式は設計・運用のパラメータが非常に多いため、定式化や線図による最適化が困難である。一般空調用途のデシカントロータについては、吸着材と空気間で起こる吸脱着現象をモデル化したシミュレーション手法が開発されており、これを用いた最適化計算が検討されている。一方でこれらの技術を、より汎用的にデシカントロータ方式が採用される低露点空気製造条件まで拡張しようという動きは、ほとんど見られない。一般空調用途における除湿機は、除湿対象となるロータ入口空気を概ね $3/4 \sim 1/4$ 程度の水分濃度まで減湿させるものであるのに対し、低露点空気製造条件では希釈する割合が全く異なる。したがってその除湿・再生挙動解析には、既存のシミュレーションモデルが適用できない可能性があると考えた。そこで「低露点空気製造条件においてデシカントロータ内の熱物質移動現象を適切に表現するシミュレーションモデルの開発とその応用利用」を目的として以下の研究を行った。

2. 吸着材ブロックを用いた基礎検証

まず、一般空調用途の除湿において優れた性能を示す高分子吸着剤を担持したハニカムブロックへの通風実験を低露点空気製造条件にて行い、シミュレーション結果との比較を行った。加えて、空気層及び吸着材層内の半径(厚み)方向の物理量分布を考慮せず集中定数法を用いるモデルと、空気層流路内半径方向の温度・湿度勾配を考慮するよう、修正を加えたモデルの双方で計算を行い、シミュレーションモデルの妥当性を検証した。結果、高分子吸着剤は低露点空気製造条件で運用した場合、吸着帯の長さが著しく長くなる、あるいは吸着帯自体が形成されにくいため、不向きであることが分かった。また、ハニカムの空気層内半径方向の温湿度分布に与える影響は、コルゲートサイズが支配的であり、低露点空気製造用途で使用される水力等価直径が 2mm 以下のコルゲートサイズでは分布偏差は小さく、計算結果に大きな影響を与えないことが分かった。したがって、空気層内半径方向の温湿度分布を考慮しない

従来のシミュレーション上の仮定は、低露点空気製造条件においても妥当であることが分かった。

3. 実測によるロータ部の除湿・再生挙動の把握と考察

ハニカムブロック出口空気温湿度は非定常特性の測定となるが、より低い露点で定量的な測定を行う時は、計測器の応答性が問題となる。一般空調用途の場合、ロータ回転方向の出口空気温湿度分布を実測した報告例が多く存在する。この方法では前述のハニカムブロック出口空気温湿度の非定常変化測定を、定常状態にあるロータ回転方向の出口空気温湿度分布測定に置き換えることができ、計測器の応答性に左右されない精度の良い測定データが期待できる。

低露点空気製造条件にて、ロータにおける除湿・再生挙動について詳細な議論・解析できるような実測例は、極少数に限られている。しかし、国内で販売されるデシカントロータ型除湿機のうち、低露点空気製造用途が占める割合は大きく、除湿・再生挙動を詳細に実測したデータは、シミュレーション結果との比較用としてだけでなく、工学的あるいは実用的に重要な意義を持つと考えられる。

そこで、定常運転状態にある市販の低露点製造用除湿機について、ロータ回転方向の出口空気の温湿度を測定する実験を行った。実験パラメータはロータ回転速度、再生温度、入口絶対湿度とし、各運転条件で同様の測定を行った。

3.1 実験装置及び方法

図1に本実験で用いた性能試験装置のシステムフローと、ロータ部断面図を示す。

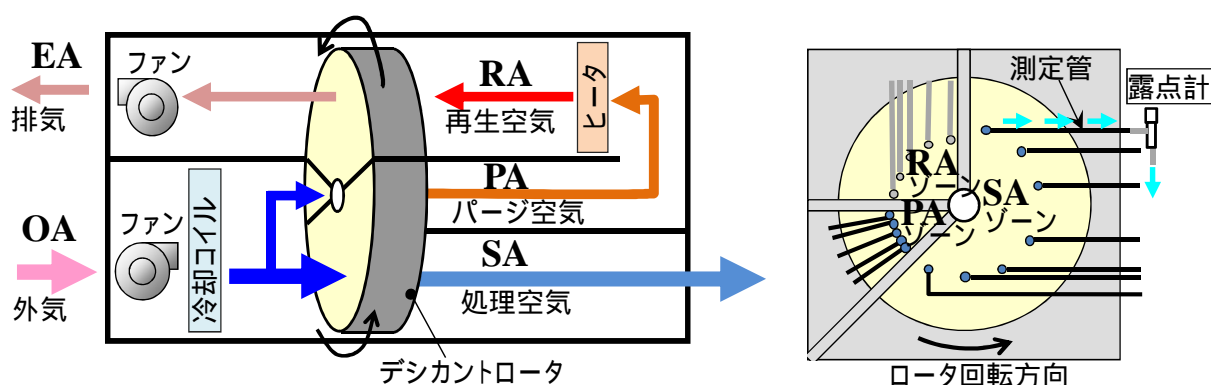


図1 性能試験装置のシステムフローとロータ断面図

ロータカセットでは、再生(RA)ゾーンと処理(SA)ゾーンの間にパージ(PA)ゾーンを設け、PAゾーン通過後の空気をヒータで加熱し、再生空気として用いた。また、ロータ出口空気の温湿度分布を得るため、各ゾーンの出口にはロータ回転方向に温度センサ(熱電対)及び湿度測定用配管を多点設けた。ロータには、低露点空気製造用途において良好な吸着特性を示すゼオライト13Xが担持されている。同ロータの仕様を表1に、相対湿度0.01%までの極低湿度域を含む範囲で測定した平衡吸着量の測定結果を図2に示す。本測定結果から回帰曲線を作成し、次章に示すシミュレーションで使用した。

表 1 試験ロータの仕様

吸着剤種類	ゼオライト 13X
材料密度	1046 kg/m ³
比熱	1030 J/(kg・K)
空隙率	0.74
ロータ直径・厚み	770 mm × 400mmL
ゾーン比率	再生 : 処理 : パージ 2 : 5 : 1

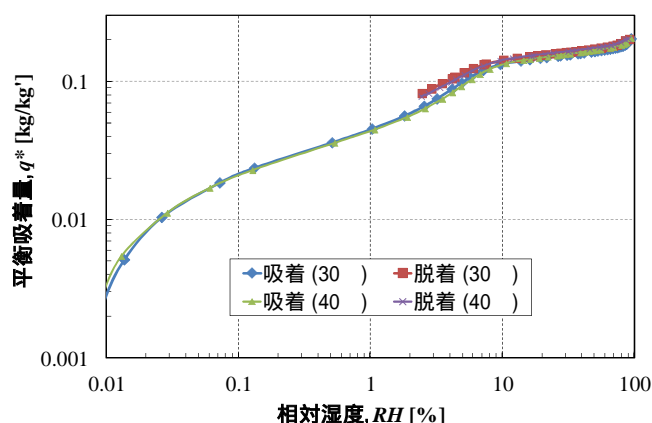


図 2 試験ロータの平衡吸着量測定結果

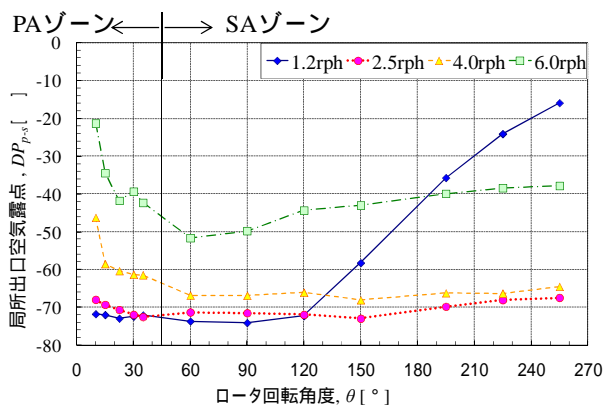
実験条件を表 2 に示す．各ゾーンの風量を固定し，ロータ回転速度 2.5rph，再生温度 112℃，入口絶対湿度 4.6g/kg' を基準条件とした．これらのうち 2 つのパラメータを基準条件の値に保ったまま，残りの 1 つの値を変化させて，各パラメータが除湿性能に与える影響を検証した．

表 2 実験条件

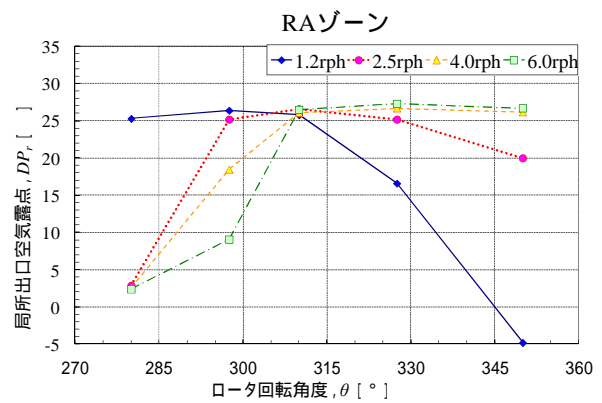
	再生ゾーン	処理ゾーン	パージゾーン
流量	480 kg/h	1180 kg/h	480 kg/h
面風速	1.6 m/s	1.6 m/s	3.3 m/s
入口空気温度	87℃, 112℃, 135℃	6.1℃, 8.7℃, 10.8℃	
入口空気絶対湿度	パージゾーン出口	4.6 g/kg', 5.6 g/kg', 6.6g/kg'	
ロータ回転速度	1.2rph, 2.5rph, 4.0 rph, 6.0rph		

3.2 実測結果と考察

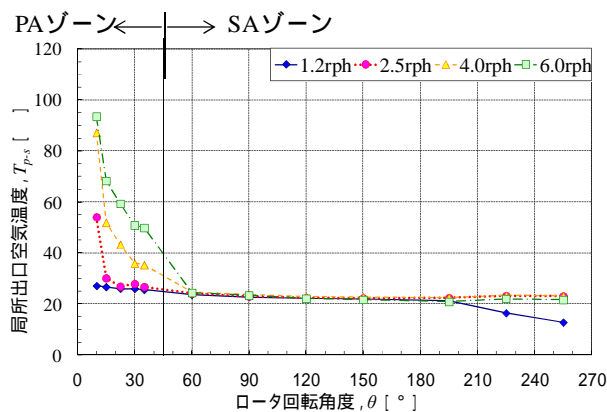
一例として，ロータ回転速度を実験パラメータとして変化させた時の測定結果を，図 3 に示す．ここで $\theta=0 \sim 45^\circ$ がパージ過程， $\theta=45 \sim 270^\circ$ が処理過程， $\theta=270 \sim 360^\circ$ が再生過程である．ロータ回転速度が遅すぎる場合（1.2rph）は処理ゾーン途中で吸着破過が生じるため，製品として得られる乾燥空気の露点は高くなる．ロータ回転速度が遅すぎる場合（6rph）は，再生時間が短く脱着が不十分になるため，処理ゾーン局所露点は比較的高い値で推移し，低露点の製品空気を得るのに不都合な状態となる．ロータ回転速度 2.5rph で示される出口空気状態が最も好ましい．この場合，局所露点は処理ゾーン途中で吸着破過を生じることは無く，概ね-70℃を維持している．



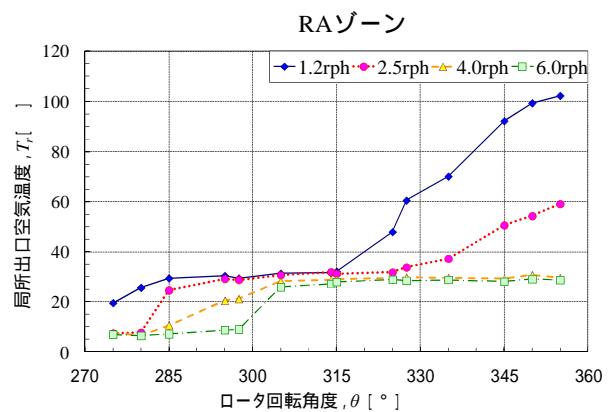
(a) パージ及び供給ゾーン出口空気露点



(c) 再生ゾーン出口空気露点

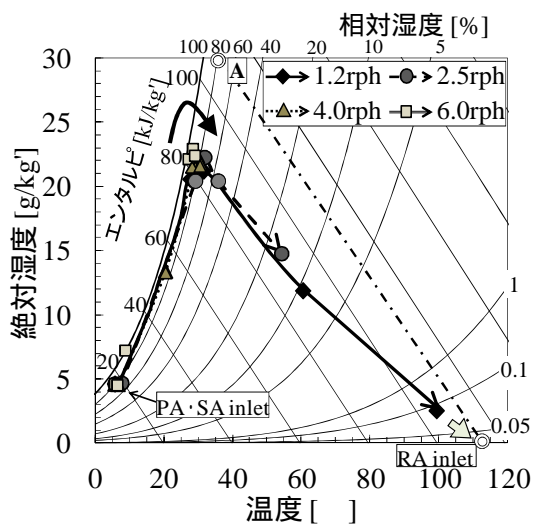


(b) パージ及び供給ゾーン出口空気温度

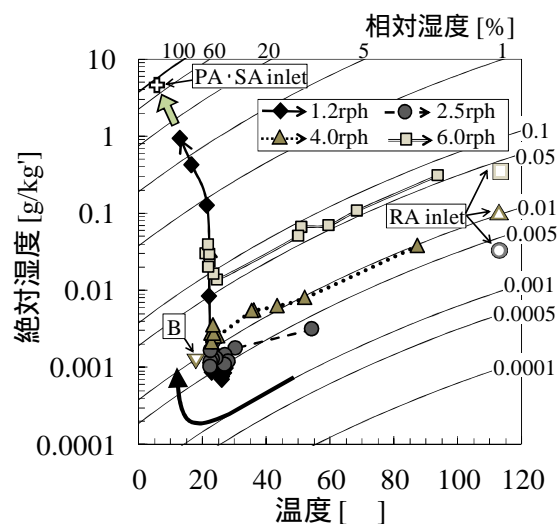


(d) 再生ゾーン出口空気温度

図3 ロータ回転方向局所出口空気露点及び温度分布に与えるロータ回転速度の影響



(a) 再生過程



(b) パージ及び処理過程

図4 異なるロータ回転速度におけるロータ回転角度進行に伴う局所出口空気の状態変化

ロータの角度分布をより詳しく考察するため、図4(a)に示すように再生過程の局所出口空気状態の、回転方向変化を空気線図にプロットした。図4(b)は、除湿過程の局所出口空気状態のロータ回転方向変化を空気線図にプロットしたものである。除湿・再生過程において局所出口空気が空気線図上で描く状態

変化は、比較的報告例が多い一般除湿用途の除湿・再生挙動と定性的に一致していることが分かった。

ロータ回転速度の他、再生温度、入口空気絶対湿度を変化させたときの測定と解析も同様に行った結果、再生出口及び除湿出口空気状態のロータ回転方向分布は、一般除湿用途のデシカントロータの除湿・再生挙動と、定性的には同様であった。したがって、製品空気の水分濃度が常湿環境よりはるかに低い低露点空気製造条件でも、低湿度域での物性値を正しく反映させれば、既存のデシカント除湿・再生の理論とシミュレーションモデルが適用できることが示唆された。

4. ロータ内部の熱・物質移動解析

デシカント性能シミュレーションにて一般的に用いられる数種類のシミュレーションモデルを用いて、ロータ周りの実測データ得た条件にて計算を行い、実験結果と整合するものはどれか検証し、低露点空気製造条件にて適用可能なモデルについて考察した。精度が確認されたシミュレーションモデルを用いて、除湿機の省エネルギー化でしばしば問題となる、冬季部分負荷制御について検討を行った。

4.1 シミュレーションモデル

計算精度を左右するポイントとなる吸着速度式及び吸着材層内の物質拡散機構に関して異なる、3つのシミュレーションモデル¹⁾を検討対象とした。モデルの種類は、吸着材層内の厚み方向の物質拡散抵抗に関して物質移動係数を総括値とすることで表現する LDF モデルと、厚み方向に格子分割を行い、境界・吸着材層内の熱・物質移動を連成させて計算する GSSR モデルの2つに大別される。検討するモデルの1つは、吸脱着推進力を吸着量差とした吸着量基準の吸着速度式を用いた LDF モデルである。吸着速度式を式(1)に示す。2つ目は推進力を絶対湿度差とした絶対湿度基準の吸着速度式を用いた LDF モデルである。吸着速度式を式(2)に示す。3つ目は、計算負荷は大きい実測結果による移動係数のフィッティングが必要無く、最も詳細で計算精度が良い GSSR モデルである。吸着速度式を兼ねた吸着材界面での物質移動式を式(3)に示す。下部記号 i は界面の値、上部記号 $*$ は平衡値、 $-$ は断面平均値を意味する。

$$\text{吸着速度式 (吸着量基準の LDF モデル)} \quad \frac{\partial \bar{q}}{\partial t} = \frac{K_s}{a_{Obj}} (q^* - \bar{q}) \quad (1)$$

$$\text{吸着速度式 (絶対湿度基準の LDF モデル)} \quad \frac{\partial \bar{q}}{\partial t} = \frac{K_F}{a_{Obj}} \frac{\rho_{Air}}{\rho_{Obj}} (\bar{x} - x^*) \quad (2)$$

$$\text{物質移動式 (GSSR モデルの吸着材表面)} \quad \frac{\partial q}{\partial t} = \frac{k_F}{a_{Obj}} \frac{\rho_{Air}}{\rho_{Obj}} (\bar{x} - x_i) + D_{Obj} \frac{\partial^2 q}{\partial y^2} \quad (3)$$

式(3)の物質移動係数 k_F は総括物質移動係数と異なり、ルイス数 1 として文献値から容易に求めることができる。式(3)における拡散係数 D_{Obj} は通常、理論に基づく推定式で導出される。山口²⁾は吸着材層内の拡散メカニズムを表面拡散と細孔拡散に分けて考え、電気回路とのアナロジーを利用して、正味の吸着材層内拡散係数 D_{Obj} を導出する理論推定式を提案しており、本研究ではこの方法を用いた。

4.2 各シミュレーションモデルの精度検証

前章で実験を行った条件のうち、最も吸脱着現象の特性が顕著に表れる運転例であった、ロータ回転

速度を 1.2rph とした時のデータに着目した．同条件にて各モデルでシミュレーションを行い，実測及び各モデル間で結果比較することで，モデルの妥当性について検証した（図 5）．

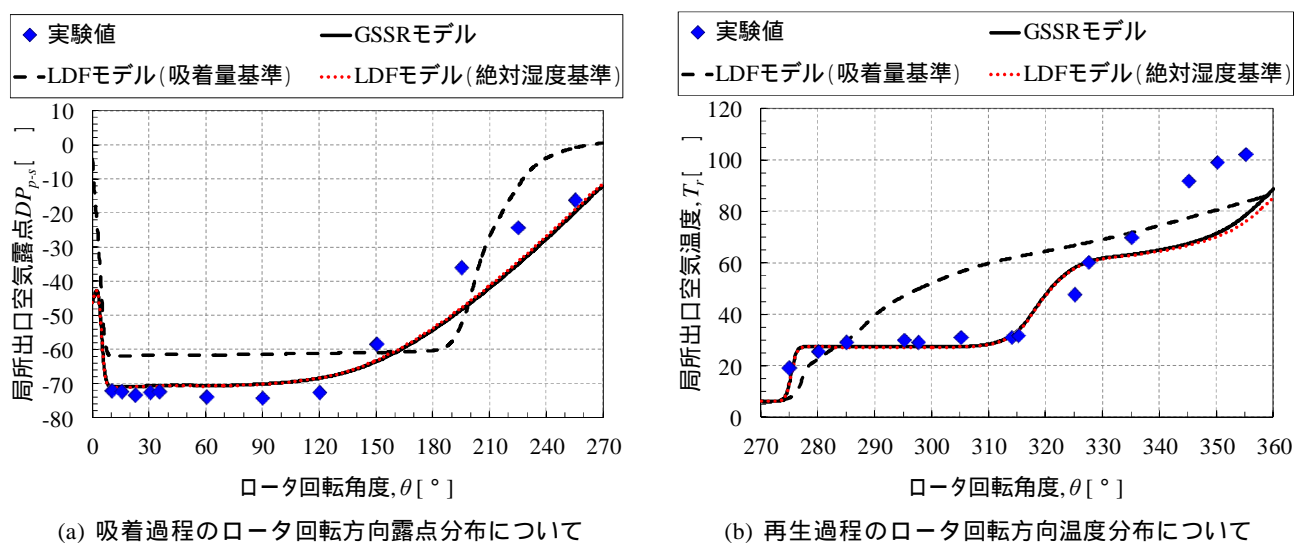
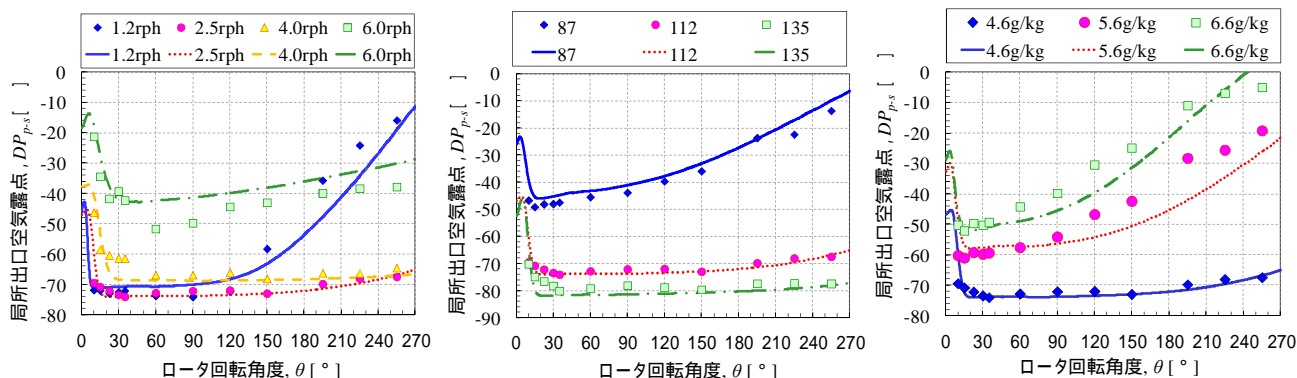


図 5 各シミュレーションモデル間での計算結果の比較

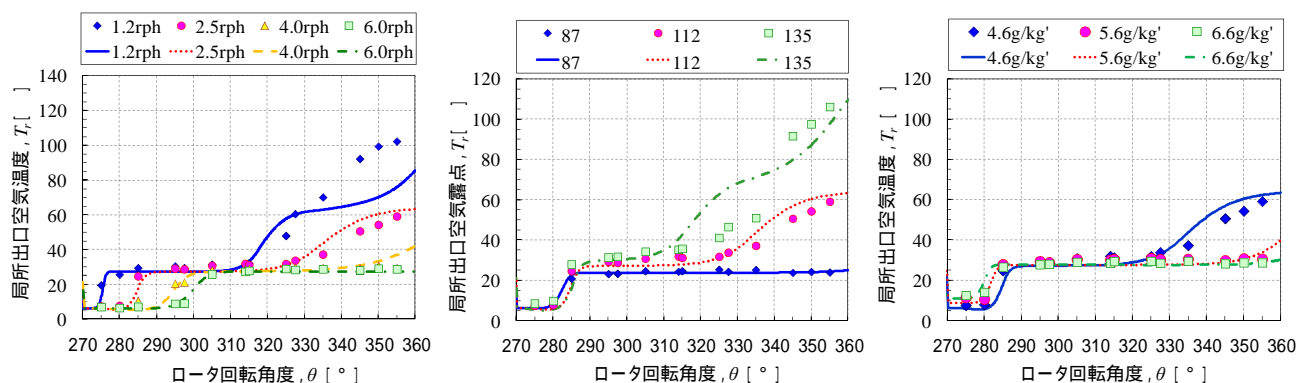
図 5 より，吸着量基準の LDF モデルは実測結果との乖離が大きく，非線形性の強い吸着等温線を持つゼオライト担持ロータの場合，適切に吸着速度を表現できないことが示唆された．最も詳細に計算する GSSR モデルを用いた場合，上述の吸着量基準の LDF モデルに比べ大幅に計算精度が向上し，実験値をほぼ再現する結果が得られることが分かった．しかし，同計算結果を精査した結果，吸着材層内の厚み方向の吸着量分布の偏差は小さく，吸着材層内の物質拡散抵抗は境膜抵抗に比べて小さいことが分かった．前述の LDF モデルより GSSR モデルのほうが計算精度が良いのは，吸着材層内厚み方向の物理量分布を考慮したからではなく，境膜抵抗の大きさを示す吸着速度式の妥当性に関して改善があったためだと考えた．境膜抵抗支配であるため，絶対湿度基準の LDF モデルにて総括物質移動係数 K_F を，境膜抵抗のみを扱う物質移動係数 k_F と同値として計算した結果，GSSR モデルとほぼ同様の計算結果を得ることができた．計算負荷を考えると，絶対湿度基準の LDF モデルが最も実用的なモデルであると判定した．一連の検討によって，これまでほとんど報告例が無い低露点空気製造条件でのデシカントロータの除湿挙動解析に関して，妥当なシミュレーションモデルを示すことができた．

4.3 実用モデルの詳細精度検証

実用モデルについて重点的に精度検証を行った．第 3 章で実験を行った全ての条件について，シミュレーションを行い，結果比較を行った．一部を図 6 に示す．図中のプロットが実測結果を，線がシミュレーション結果を示す．グラフが描く凹凸などの定性的性質は，どのパラメータ変化に対しても，実験値と概ね一致した．簡易モデルである絶対湿度基準の LDF モデルでも，デシカントロータ内で起こる除湿・再生挙動を概ね正しく再現できていると考えられる．



(a) パージ及び処理ゾーン出口空気露点に関する結果



(b) 再生ゾーン出口空気温度に関する結果

図6 ロータ回転方向局所出口空気露点及び温度に関する実験結果との比較
(左列：ロータ回転速度，中央列：再生温度変化，右列：入口絶対湿度変化)

4.4 運転パラメータの最適化

これまで検討対象としてきた図1に示すシステムフローにおいて，ロータでの除湿負荷が変化した場合の最適制御方法について，シミュレーションで検討した．各ロータ除湿負荷に対して，再生温度とロータ回転速度を最適化対象の操作パラメータとし，マトリクス状に計算を行った．図7に再生温度とロータ回転速度を変化させた際の，処理出口空気露点に関する等値線図を示す．(a)が処理入口絶対湿度 5.6g/kg （露点 $+5.5$ ）とした結果，(b)が部分負荷条件に相当する 2.1g/kg （露点 -7.0 ）とした時の結果である．等値線図を用いた運転パラメータ最適化とは，所定の供給露点となる運転パラメータの組み合わせのうち，ロータ再生に要するエネルギーが最小となる条件を選ぶことである．図5において，供給露点を -50 一定とし，ロータ回転速度が異なるA～Gの運転条件を示した．供給露点は同じ値であるが，再生消費エネルギーにはこれらの条件の中で差が生じており，それぞれの値を図8に整理した．

図8より部分負荷運転時は再生温度を所定の値まで下げることによって，供給露点を一定値に保つことができ，省エネルギー化が可能であると分かる．一方，パージ出口空気を加熱して再生空気に用いる本システムフローにおいて，ロータ回転速度の最適値はロータでの除湿負荷によって大きく変化することはないため，負荷に合わせてロータ回転速度を最適化する必然性は低いことが分かった．

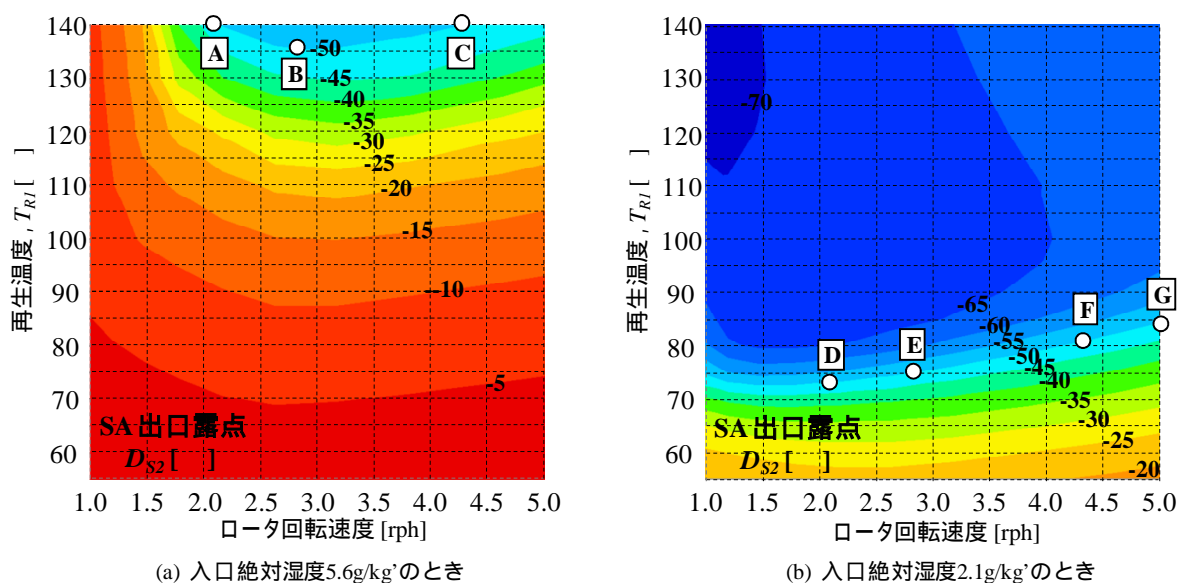


図7 各入口絶対湿度における SA 出口露点の再生温度およびロータ回転速度の影響

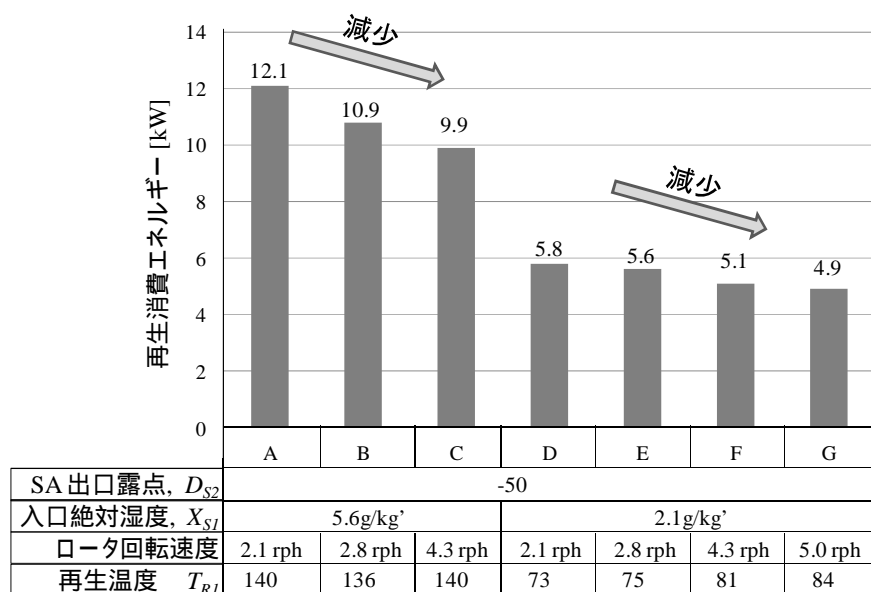


図8 運転パラメータの組み合わせが再生消費エネルギーに与える影響

4.5 省エネルギー効果試算

最後に、部分負荷運転を含む年間の運用コスト試算を行った。外気絶対湿度に合わせて再生温度を変更する部分負荷制御を行うことで、外気の絶対湿度が所定値を下回る冬季の再生熱源の負荷が低減される。同時期の再生熱源の消費電力は、安全性を重視する従来の再生温度一定制御と比較して計 37% 減少する試算結果を得た。

参考文献

- 1) 竹内雍監修「最新吸着技術便覧」NTS (1999)。
- 2) 山口誠一：早稲田大学大学院博士論文，pp.50-62，(2010)。

学位論文審査報告書（甲）

1. 学位論文題目（外国語の場合は和訳を付けること。）

水蒸気吸着材ロータによる低露点空気製造とその運転指針に関する研究

2. 論文提出者 (1) 所 属 システム創成科学 専攻

(2) 氏 名 ^{ふり}綾 ^{がな}目 ^{あやめ}久 ^{ひさお}雄

3. 審査結果の要旨（600～650字）

平成26年8月4日に第1回学位論文審査委員会を開催し、平成26年8月5日の口頭発表会の後、第2回審査委員会を開催し、以下の通り判定した。

本論文は、クリーンルーム等に多用される低露点空気製造装置の省エネルギー化を目的とし、水蒸気吸着材ロータにおける熱・物質移動現象の詳細把握とこれに基づく数値シミュレーションの信頼性向上に取り組んだものである。まず、実機を利用して、吸着材ロータの回転方向に形成される湿度・温度分布を詳細に測定し、一般空調条件での除湿挙動と同様であることを明らかにした。なお、低露点製造条件における湿度・温度分布の計測は、極低湿度空気が対象となることから容易ではなく、これまでに報告例は見当たらない。次に、この実験結果をフィッティング対象として、数値シミュレーションの信頼性向上を図った。ここで、計算精度に大きく影響する吸着速度の表現式として、吸着材層内の物質拡散機構を考慮した厳密計算に加え、計算負荷を低減できる線形推進力近似法の適用を検討している。この結果、対象とした水蒸気吸着材ロータでは、物質移動抵抗は主として空気側に存在することを見出し、絶対湿度基準の線形推進力近似法の適用が最も実用的であることを示した。最後に、この数値シミュレーションによって、再生温度およびロータ回転数を制御変数として冬季部分負荷時の運転指針を得ている。

以上のように本論文は、水蒸気吸着材ロータ式低露点空気製造装置の省エネルギー化に関して有益な知見および手法を得ており、工学的な寄与が大きく、博士（工学）の学位に値するものと判定した。

4. 審査結果 (1) 判 定（いずれかに○印） 合 格 ・ 不合格

(2) 授与学位 博 士（ 工 学 ）